

## Teの高密度電子励起状態の研究

著者	宮内 秀和
号	557
発行年	1975
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/9293">http://hdl.handle.net/10097/9293</a>

氏 名	宮 内 秀 和
授 与 学 位	工 学 博 士
学 位 授 与 年 月 日	昭 和 5 1 年 3 月 2 5 日
学 位 授 与 の 根 拠 法 規	学 位 規 則 第 5 条 第 1 項
研 究 科 , 専 攻 の 名 称	東 北 大 学 大 学 院 工 学 研 究 科 応 用 物 理 学 専 攻 ( 博 士 課 程 )
学 位 論 文 題 目	Te の 高 密 度 電 子 励 起 状 態 の 研 究

指 導 教 官	東 北 大 学 教 授 仁 科 雄 一 郎
論 文 審 査 委 員	東 北 大 学 教 授 仁 科 雄 一 郎 東 北 大 学 教 授 堀 江 忠 児 東 北 大 学 教 授 稲 場 文 男 東 北 大 学 助 教 授 渡 辺 剛 東 北 大 学 助 教 授 後 藤 武 生

## 論 文 内 容 要 旨

### 第 1 章 序 論

序論として従来の研究の概要および本研究の目的を述べる。光励起により半導体内に電子-正孔対を高密度に作り出した状態では、電子-正孔対の間隔が密になるためそれらの粒子間の相互作用が強くなる。このような高密度励起状態に関する研究は、電子-正孔対の励起状態の安定性、粒子間の多体的相互作用に関する問題の解明に重要である。このことから、近年この分野に関する研究が数多くなされている。

Ⅱ-VI 族化合物、Ge 及び Si などの物質では、電子-正孔対の励起状態として種々の準安定状態が観測され、理論的にもそのエネルギー-安定性の問題が明らかにされつつある。しかし、物質の相違による種々の安定状態の相違を統一的に理解するまでには至っていない。Te は、この間

題に関し従来研究されてきた他の物質に比べ励起子半径が大きいため、高密度励起状態が比較的低い励起強度のレーザー光で作り得る物質である。このような励起子系の高密度励起状態では、低温度で電子正孔液体への相転移の可能性が考えられる。この実験条件上の利点があるにもかかわらず、Te の高密度電子励起状態に関する研究はほとんどなされていない。

本研究では、Te の高密度励起状態に関し、次の点を明らかにすることを目的とする。

- 1) Te の高密度励起状態で電子-正孔対の準安定状態としてどのような状態が実現されるか、種々の条件のもとで発光測定により調べる。
- 2) Te の高密度励起状態で実現することが予想される電子正孔液体に関して、そのエネルギー値と電子-正孔対濃度の関係を明らかにすることにより、電子-正孔間の多体的相互作用に関する知見を得る。

## 第 2 章 実 験

Te の発光測定をするための実験装置 (Fig-1) の内容を説明している。励起光源としてパルス巾 25nsec, 波長  $1.06\mu$  の  $\text{Nd}^{3+}$  YAG レーザーを用いた。

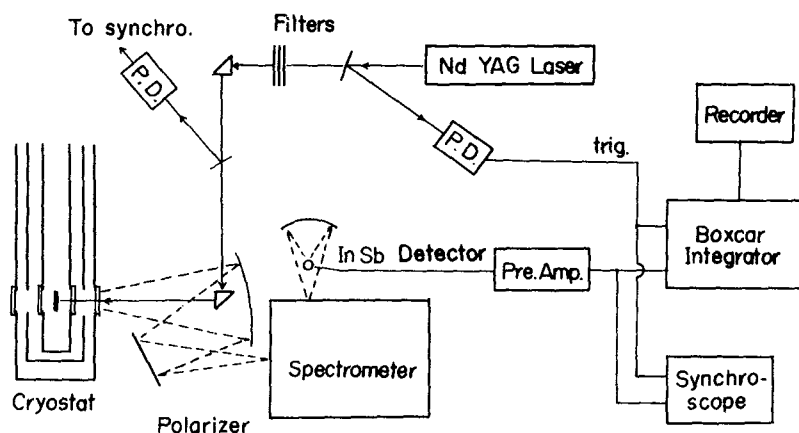


Fig. 1 発光測定装置の全体のブロック図

また、不純物効果の少ない高純度単結晶を得るために Te の精製及び単結晶成長方法を述べている。

## 第 3 章 結 果

Te は歪みを受けやすい試料である。歪みのない良い試料を発光測定から探し出し、再現性のある発光スペクトルを観測した。発光線の特徴を種々の条件のもとで調べ以下に述べる結果を得た。

(1) 4.2 Kの温度に於ける種々の励起強度での発光測定からFig-2に示す結果が得られた。弱い励起領域では比較的鋭い発光線(H)が励起子のエネルギー値の近傍に見られ、強い励起領域では発光スペクトル中の広い発光線(L)がH発光線より低エネルギー側に見られる。

(2) 種々の温度での実験からFig-3に示す結果が得られた。12 K以上の温度領域では、H発光線は観測されず、L発光線のみが観測された。温度上昇に伴う発光位置の高エネルギー側への移動は、エネルギー・ギャップの変化に伴ったものであると考えられる。

(3) 電場下での実験からFig-4に示す結果が得られた。H発光線は電場の影響を受けやすいが、L発光線は電場による影響をあまり受けない。

(4) 偏光特性に関する実験から、H、L発光

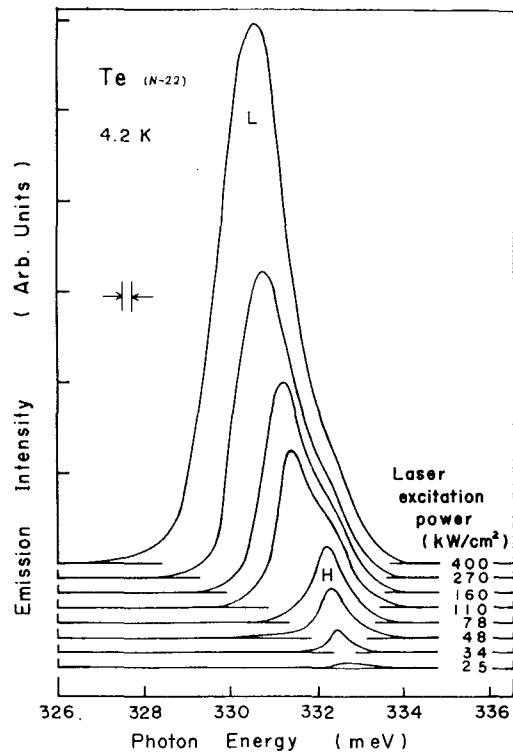


Fig. 2 種々の励起強度における発光スペクトル

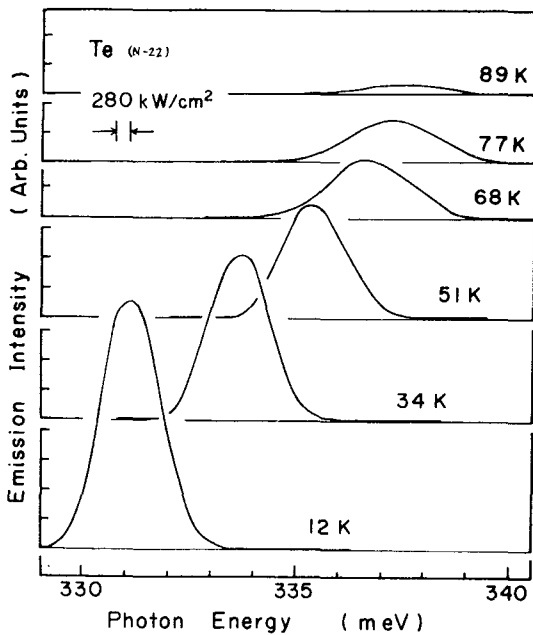


Fig. 3 各温度におけるL発光線のスペクトル

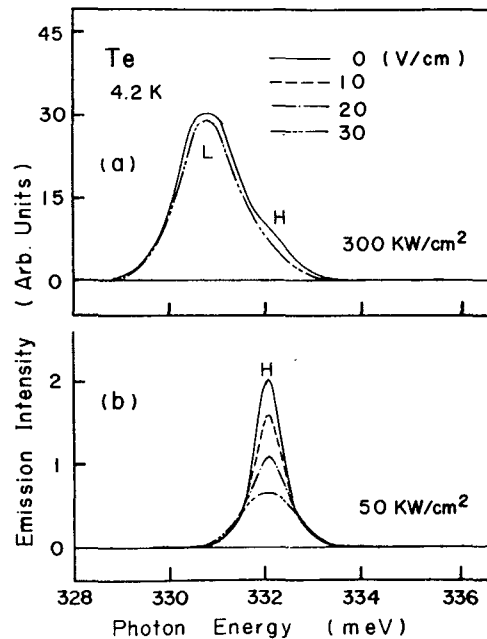


Fig. 4 電場下での発光スペクトル

線は共に  $E \perp c$  軸に偏光していることが分った。これは伝導帯－価電子帯間の許容遷移の撰択則に対応する。

(5) 発光の緩和時間に関する実験から、L発光線の発光緩和時間 10 nsec 以下であることが分った。

## 第4章 考 察

前章に示した L, H 発光線の特徴と他の物質における現象との比較から、発光線の成因を考察する。一般に、電子と正孔の束縛状態からなる励起子は温度あるいは電場により解離するが、電子正孔液体は束縛状態を持たないことから解離現象を示さないことが知られている。H 発光線は、その発光強度が温度上昇及び電場印加により減少することから、励起子からの発光であると考えられる。一方、L 発光線は、励起子が不安定になる温度より十分高い温度でも観測され、また電場の影響をあまり受けないことから、束縛状態を持たない電子－正孔系の帯間遷移による発光であると考えられる。更に、その発行スペクトルのエネルギー値及び発光スペクトル形状が他の物質で観測されている電子正孔液体からの発光の特徴に類似していることから、低温での L 発光線は電子正孔液体の消滅の際の発光であると考えられる。発光線の緩和時間、偏光特性等の特徴もこの考えと矛盾しない。

次に、この電子正孔液体の電子－正孔対濃度とエネルギー値の関係を明らかにするため、発光スペクトルの形状を解析する。電子正孔液体からの発光が直接帯間遷移によるものと仮定すると、スペクトル形状は近似的に次式により求められる。

$$R(h\nu) \propto \sum_{K_V, K_C} |H_{C,V}|^2 f_e(K_C) f_h(K_V) \delta_{K_C, K_V} \times \delta(E_C(K_C) - E_V(K_V) - h\nu - (E_g - E_g')) \quad (1)$$

$H_{C,V}$  は遷移に関する momentum matrix 要素である。 $f_e(K_C)$ ,  $f_h(K_V)$  は電子及び正孔の分布関数であり次式で与えられる。

$$f_e = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{E_C(K_C) - \mu_e(n)}{kT}\right)}, \quad f_h = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{E_V(K_V) - \mu_h(n)}{kT}\right)}$$

$\mu_e$  と  $\mu_h$  は電子及び正孔の Fermi 準位、 $E_C$  と  $E_V$  は伝導帯及び価電子帯のエネルギーである。また、 $E_g$  は普通のエネルギー・ギャップ、 $E_g'$  は電子－正孔対間の相互作用から予想される見かけのエネルギー・ギャップである。 $\mu_e$  と  $\mu_h$  が電子－正孔対濃度  $n$  に依存していることから、 $n$  と温度  $T$  を adjustable parameter として(1)式を計算し実験値と比較した。その結果を Fig-5

に示す。図中のWは $T = 0$  Kでの化学ポテンシャルであり、 $E_g' = W - (\mu_e^0 + \mu_h^0)$ の関係にある。計算値は、実験値の低エネルギー側の領域を除いてはよく一致している。低エネルギー側の両者の不一致は粒子間散乱のAuger効果により定性的に説明することができる。

次に、Brinkmanらにより導かれた電子正孔液体のエネルギーに関する理論式を使い $T = 0$  KでのTeの電子-正孔対あたりの平均エネルギーを計算する。パラボリックバンドを仮定することにより平均のエネルギー $\langle E \rangle$ は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} \langle E \rangle = & E_g + \frac{2.21}{r_s^2} \left( \frac{1}{m_e^*} + \frac{1}{m_h^*} \right) \mu \\ & - \frac{0.916}{r_s} \times 2 + E_{co}. \quad (2) \end{aligned}$$

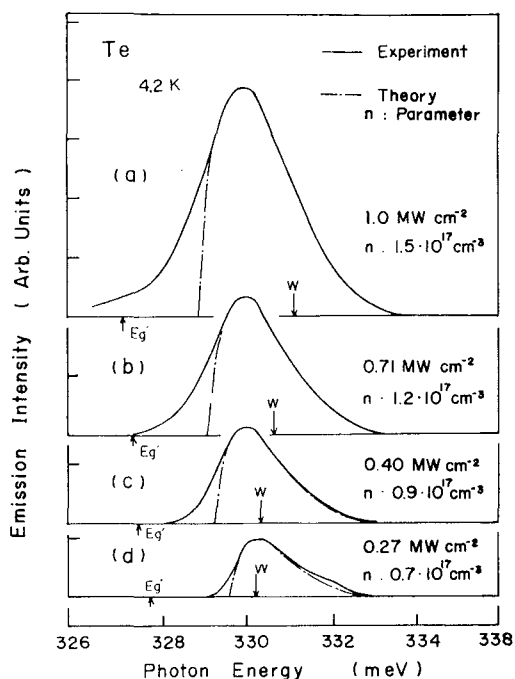


Fig. 5 発光スペクトルとスペクトル計算結果の比較

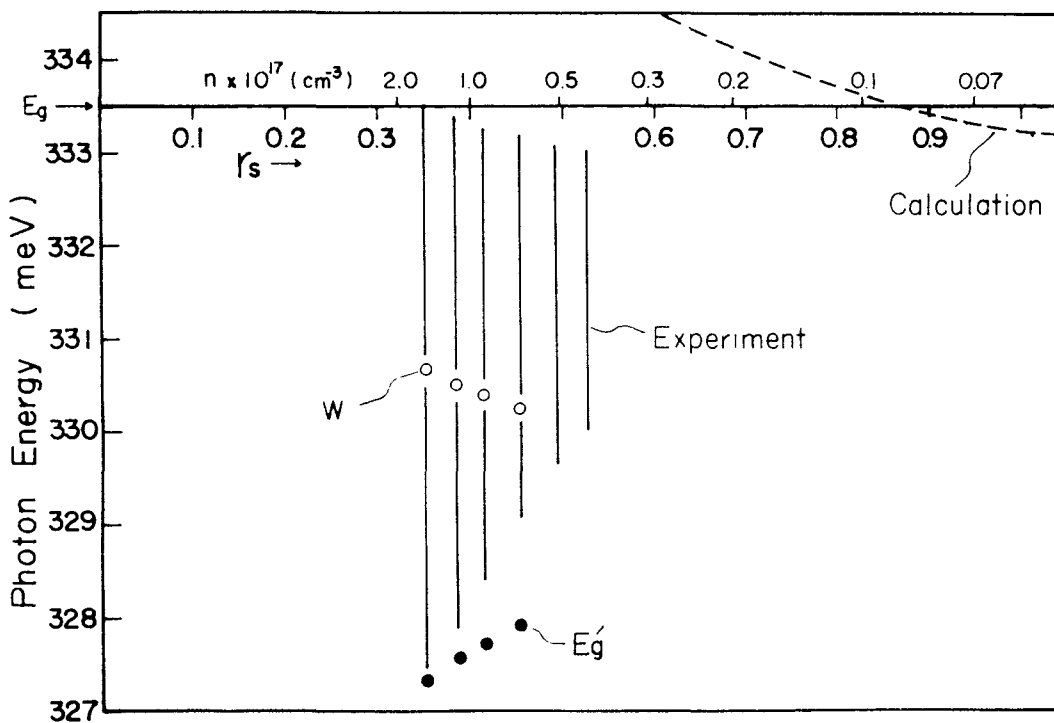


Fig. 6 Teの電子正孔液体状態のエネルギー値と濃度の関係

$$r_s = r_0/a_x, \quad n = \left[ \frac{4\pi}{3} r_0^3 \right]^{-1}, \quad 1/\mu = 1/m_e^* + 1/m_h^*$$

ここで、 $a_x$ は励起子の半径である。Teのパラメーターとして $m_e^* = 0.091$ 、 $m_h^* = 0.14$ の値を用いて(2)式を計算した。

以上の実験及び考察から、Teの電子正孔液体状態に関し、Fig-6に示すようなエネルギー値と電子-正孔対濃度の関係を得ることができた。実線は発光スペクトルの観測されたエネルギー領域を示す。スペクトル解析から得られた $E_g$ 、 $W$ の値も示した。破線は(2)式から得られた電子-正孔対あたりの平均エネルギーである。しかし、実験値と計算値との定量的な相違を十分に説明するには至っていない。

## 第5章 結 論

本研究により得られた結果をまとめている。

## 審 査 結 果 の 要 旨

半導体の高密度電子励起状態に関する研究は、極端な励起状態にある固体内電子が、いかなる電子的相移転を通じて、その光学・輸送諸特性に顕著な変化を誘起せしめるかを理解する上に重要である。

本論文はⅥ族半導体TeをNd-YAGレーザー光によって照射した際に、空間的に高密度に励起される電子・正孔対が、そのエネルギー状態の変化を通じ、いかなる赤外発光特性に寄与するかを極低温領域において実験的に解析したものであって全文5章よりなる。

第1章は序論である。

第2章はNd-YAGパルスレーザー光励起による発光スペクトル測定のための実験装置の概略、ならびに単結晶試料の作製方法についての説明を与えている。

第3章は実験結果を述べたものであって、 $1.06\mu$ の波長(光子エネルギー:  $1.17\text{ eV}$ )をもつレーザー光のパルス尖頭強度を、 $1\text{ MW}/\text{cm}^2$ まで変化させて試料を照射したばあいの発光スペクトルを取扱ったものである。まず弱い励起強度では $4.2\text{ K}$ において $0.333\text{ eV}$ 付近に $0.5\text{ meV}$ 程の半値巾をもつ発光線が観測される。これはH発光線と名付ける。このH線は励起光強度が $100\text{ kW}/\text{cm}^2$ 程度まで増加するに際して非線形的に増大する。その間、最大発光強度を与える光子エネルギーは、 $1\text{ meV}$ 程度低エネルギー側に移るだけである。これに対し $100\text{ kW}/\text{cm}^2$ 程度以上の励起光強度では、新しい発光線がH線の低エネルギー側に成長し始め、その発光ピークは、上記最高励起強度に達するまでに $2\text{ meV}$ 低くなると共に、半値巾が著しく増大する。この発光線をL線とする。L線は、励起強度にほぼ比例して増大する。HおよびL両スペクトル線の形状と温度、励起強度との関係、スペクトルの偏光特性、更には印加電場による変化についての測定結果が述べられている。

第4章は上記実験結果についての考察であって、H線スペクトルが温度、電場によって著しく変化すること、また発光の電場ベクトルがc軸に垂直であって、基礎吸収の選択則に矛盾しないことなどより、その成因は励起子状態からの再結合によるものと推論している。またL線については、スペクトル線の形状変化とエネルギー変化より、励起子束縛状態から解離した電子・正孔液体(プラズマ状態)からの発光によるものと考えられる。そして上村らの得た電子帯の分散関係に基づき、各担体の準Fermiエネルギーと励起電子・正孔対密度を推算している。

第5章は結論である。

以上の結果はTeの励起子束縛エネルギーが極めて小さく、半導体-金属相転移密度が極めて



低いことを示しており、既に行われた光伝導度の測定結果とよく対応している。

また一般にこの種の半導体材料が、極端な励起状態においてどのような光応答を示し得るものであるかについて、この研究は基本的知見を与えるものであって応用物理学に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。